

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 57-145103

(43)Date of publication of application : 08.09.1982

(51)Int.Cl.

C08F 8/48

(21)Application number : 56-030686

(71)Applicant : KURARAY CO LTD

(22)Date of filing : 03.03.1981

(72)Inventor : TAKAMATSU HIDEO
KONO NAOTAKE

(54) PRODUCTION OF CYCLIZED POLYMER

(57)Abstract:

PURPOSE: To produce a cyclized polymer excellent in abrasion resistance, chemical resistance and adhesiveness, by cyclizing a specified low-MW isoprene polymer to which a maleic anhydride (derivative) has been added.

CONSTITUTION: A modified polymer is obtained by adding 0.3W12mol%, per isoprene monomer unit of polymer, maleic anhydride (derivative) to a low-MW isoprene polymer, cis-1,4-addition content $\leq 70\%$, viscosity-average MW10,000W 150,000, obtained by an anionic polymerization method, carrying out an addition reaction of the mixture by heating in the presence or absence of a solvent or a radical catalyst. Next, this modified polymer is dissolved in a solvent so that the concentration is 5W80% and then cyclized at room temperature to 200° C for 2W10hr in the presence of an organic sulfonic acid, a Friedel-Crafts catalyst, etc., so that the iodine value of the cyclized polymer is 100W300.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the
examiner's decision of rejection or application
converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of
rejection][Date of requesting appeal against examiner's decision
of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

BEST AVAILABLE COPY

⑨ 日本国特許庁 (JP)
⑫ 公開特許公報 (A)

⑪ 特許出願公開
昭57—145103

⑬ Int. Cl.³
C 08 F 8/48

識別記号

庁内整理番号
6946—4J

⑭ 公開 昭和57年(1982)9月8日

発明の数 1
審査請求 未請求

(全 7 頁)

⑮ 環化重合体の製造方法

⑯ 特 願 昭56—30686

⑰ 出 願 昭56(1981)3月3日

⑱ 発 明 者 高松秀雄
茨城県鹿島郡波崎町太田98

⑲ 発 明 者 港野尚武
茨城県鹿島郡波崎町太田98

⑳ 出 願 人 株式会社クラレ
倉敷市酒津1621番地

㉑ 代 理 人 弁理士 本多堅

明 細 書

1. 発明の名称

環化重合体の製造方法

2. 特許請求の範囲

低分子量ジエン重合体を環化する際に、低分子量ジエン重合体としてレスー1,4結合量70%以上、分子量10,000~150,000の低分子量イソプレン系重合体に無水マレイン酸またはその誘導体を前記重合体のイソプレン単量体単位あたり0.5~1.2モル当り付加した変性重合体を用いることを特徴とする環化重合体の製造方法。

3. 発明の詳細な説明

本発明は、特定の官能基を有する化合物によつて変性された低分子量イソプレン系重合体を出発原料として用いる環化重合体の製造方法に関する。

天然ゴム(NR)や合成イソプレンゴム(IR)等のイソプレン系ゴムは、酸性触媒の存在により容易に環化され、それによつて得られる環化ゴムは、ポリオレフィンに対する付着性、金属等への接着性、耐摩耗性および耐薬品性に優れる等の特

長を有しており、接着剤、塗料、印刷インキ用ビヒクル、電気絶縁材料等に利用されてきた。また近年、分子鎖に反応性の高い二重結合を有することから感光性材料への応用も試られている。

しかしながら、従来より環化重合体の出発原料として用いられてきた天然ゴム(NR)や合成イソプレンゴム(IR)は、極めて分子鎖の高い重合体であり、溶解作業性が著しく劣り、環化反応を行なうとしても低濃度で行なわざるを得ず、その生産性は極めて低いものであつた。また、低固型分濃度の反応により生産性を度外視してつくられた環化ゴムは、アルキッド樹脂のような極性の高い樹脂との相溶性がかなり劣つたものであるのみならず、ポリオレフィンや金属に対する接着性もかならずしも充分なものでなかつた。

これらの欠点を解消するため、低分子量ゴムを用いることが種々提案されてはいるが、それから得られる環化重合体もまた、接着性、樹脂との相溶性の点で充分満足できるものではない。

本発明者等は、接着性、樹脂との相溶性に優れ

た環化重合体を容易に製造すべく、鋭意検討を重ねた結果、低分子量ジエン重合体を環化して η ウ素価が100~300である環化重合体を製造するに際して、低分子量ジエン重合体としてススー1,4結合量が70%以上であつて分子量が10,000~150,000である低分子量イソブレン系重合体に無水マレイン酸またはその誘導体を前記重合体のイソブレン単量体単位あたり0.3~1.2モル当り付加した変性低分子量イソブレン系ゴムを用いることにより、環化重合体が本来有している優れた性能をなんら損うことなく、接着性樹脂との相溶性に優れ、したがつて印刷インキ、塗料、コーティング材等に好適な環化重合体が得られることを見出し、本発明を完成するに至つた。

本発明の製造方法において、まず第一に重要なことは、環化される変性重合体のベースとなる低分子量イソブレン系重合体が、特定のマイクロ構造および分子量を有するものを用いることである。すなわち、前記低分子量イソブレン系重合体としては、そのススー1,4結合が70%以上で、かつ

される極限粘度($[\eta]$)により次式から算出されるものである。

$$[\eta] = 1.21 \times 10^{-4} M_v^{0.77}$$

このような特定のマイクロ構造および分子量を有する低分子量イソブレン系重合体としては、アニオン重合法によつて得られた低分子量イソブレン系重合体、天然ゴム(NB)やチーグラール触媒またはリチウム系触媒を用いて製造された高分子量の合成イソブレンゴム(IB)等の圓形ゴムを熱分解等によつて得られる酸化減成型の低分子量イソブレン系ゴム等が挙げられる。しかしながら酸化減成型の低分子量イソブレン系重合体は、その品質が不安定であり、また不純物を多く含むので、アニオン重合法によつて得られた低分子量イソブレン重合体が好ましい。

前述したアニオン重合法によつて製造される低分子量イソブレン系ゴムは、イソブレン単量体あるいはイソブレン単量体と少量のブタジエンやスチレン等のイソブレンと共重合しうる単量体とを重合溶媒の存在下あるいは不存在下にリチウム系

分子量が10,000~150,000であることが必要である。

ススー1,4結合量が上記範囲より少な過ぎると、最終的に得られる環化重合体がフィルムとしての性能が劣つたものとなり、例えば塗料、印刷インキとして用いた場合にその塗膜が脆いものとなり、実用に供し得ない。したがつてこのような観点から好ましくはススー1,4結合量80%以上が望ましい。なお、このススー1,4結合量は赤外線吸収スペクトル法により求められるものである。

また、分子量が10,000未満であると、得られる環化重合体は、そのフィルム物性が悪く、塗料として使用した場合に塗膜が劣化しやすく、脆いものとなる。逆に分子量が150,000を超えると、得られる環化重合体は溶剤に溶解して使用する場合に溶液粘度が高くなり過ぎて作業性が著しく悪いものとなつてしまう。このような点より、より望ましい分子量は20,000~80,000程度である。なお、本発明でいう分子量とは粘度平均分子量(M_v)を意味し、30℃のトルエン溶液中で測定

重合触媒を用いて重合することによつて得られる。リチウム系重合触媒の代表的な例としては、金属リチウム、またはメチルリチウム、プロピルリチウム、ブチルリチウム、ローナフチルリチウム、メチレンジリチウムあるいはジスチレニルリチウム等の有機リチウムなどが挙げられる。低分子量イソブレン系重合体の分子量は、よく知れているように、イソブレン単量体と触媒との使用比率で容易に制御される。また重合触媒は重合の制御が容易であり、使用する方が適切であり、その例としてはローブタン、イソペンタン、ローヘキサン、ローヘブタン、ベンゼンあるいはキシレン等の不活性化炭化水素が挙げられるが、重合系に極性の炭化水素化合物が存在すると得られる重合体のススー1,4結合量が小さなものになる場合が多いのでその使用に際しては留意しなければならない。

このような特定のマイクロ構造および分子量を有する低分子量イソブレン系重合体は、無水マレイン酸、またはマレイン酸、マレイン酸エステル、マレインアミドあるいはマレインイミド等の無水

マレイン酸誘導体を付加させることによつて変性低分子量イソブレン系重合体にされ、環化重合体の出発原料とされる。低分子量イソブレン系重合体への無水マレイン酸またはその誘導体の付加反応は、例えば低分子量イソブレン系重合体中に無水マレイン酸またはその誘導体を加えて、溶媒またはラジカル触媒の存在下または不存在下に加熱反応することによつて容易に行なうことができる。ここで使用される溶媒としては、ローブタン、ローヘキサン、ローヘプタン、シクロヘキサン、ベンゼン、トルエンあるいはキシレン、さらにはそれらのハロゲン化物であるハロゲン化炭化水素が挙げられる。なお、本発明において使用される変性低分子量イソブレン系重合体としては、上述した変性低分子量イソブレン系重合体の他に、低分子量イソブレン系重合体に付加導入された無水マレイン酸基等に、例えばp-トルエンスルホン酸のような触媒の存在下または不存在下にメタノール、エタノール、プロパノール等のアルコールを反応させて無水マレイン酸等に基づくカルボキ

シル基の一方あるいは両方をエステル形のにしたもの、またアンモニアやプロピルアミン、ブチルアミン等の第1級モノアミンを反応させてアミド化したもの、さらにはこのアミド化物の脱水反応によりイミド化したもの、エタノールアミン、イソプロパノールアミン等のアミノアルコールを反応させてアミド化し、さらに脱水することによりN-(ヒドロキシヒドロカルビル)-マレインイミドを付加した形のもの、第1級、第3級ジアミンと反応させてアミド化し、脱水することによりN-(アミノヒドロカルビル)-マレインイミドを付加した形のものを包含する。かかる誘導体化の反応は、低分子量イソブレン系重合体に無水マレイン酸が付加された後に行なわれる。

これらの変性低分子量イソブレン系重合体のなかでも、それ自身の長期間にわたる粘度安定性の点から無水マレイン酸を付加した変性イソブレン系重合体よりも、該変性低分子量イソブレン系重合体の無水マレイン酸基をアルコール誘導体、アミン類の誘導体、イミド類の誘導体の形となつて

いる変性低分子量イソブレン系重合体が好ましい。

このようにして本発明の製造方法における環化重合体の出発原料である、変性低分子量イソブレン系重合体が製造されるが、ここで重要なことは、低分子量イソブレン系重合体に付加される無水マレイン酸またはその誘導体の量（以下、付加量という）が前記重合体のイソブレン単量体単位に対して0.3～1.2モル当りでなければならないということである。すなわち、付加量が低過ぎると最終的に得られる環化重合体において接着性や、樹脂との相溶性の改良効果が乏しいものとなり、また逆に付加量が多過ぎると溶液とした場合に粘度が高くなり過ぎて作業性の著しく悪いものとなつてしまい、所期の目的を達成することができなくなる。このような観点からより好ましい付加量は1～6モル当りである。

変性低分子量イソブレン系重合体の環化方法は、従来より行なわれている公知の方法が用いられる。例えば、変性低分子量イソブレン系重合体を、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素

の溶媒に溶解した後に、濃硫酸またはp-トルエンスルホン酸等の有機スルホン酸類、四塩化スズ、四塩化チタン等のフリーデルクラフツ触媒、塩化水素、臭化水素等のハロゲン化水素、三塩化ホウ素等の非金属ハロゲン化物、あるいは五酸化リン、三塩化ホスホリジ等のリン化合物を加えて加熱することにより得られる。また該変性低分子量イソブレン系ゴム重合体を界面活性剤の存在下または不存在下に水を分散させ、水性分散体とした後に前述の触媒を添加し、加熱反応させることによつても得られる。また、直接ロール等により触媒とともに加熱混合することによつても得ることが可能である。かかる環化反応において、本発明の主旨を損なわない程度に天然ゴム（NR）や合成イソブレンゴム（IR）を混合して用いることも可能である。溶液中で反応を行なう場合には変性低分子量イソブレン系ゴム重合体の濃度は5～80重量度で行なうことができる。反応はいずれの方法をとるにしても、室温～200℃、好ましくは80～150℃の範囲で2～10時間行なわれ

る。

環化反応は、環化重合体のヨウ素価が100～300となるよう、反応温度、反応時間、反応系の濃度を決めて行なわれる。ヨウ素価が100より小さいと得られる環化重合体は脆いものとなつてしまい、塗料、印刷インキ等の用途への適用は不可能となる。またヨウ素価が300より大きいと、得られる環化重合体の接着性、密着性が不充分となり、好ましくない。かかる観点よりより好ましいヨウ素価は170～280の範囲にある。

本発明の方法によつて得られる環化重合体は、本来それが有している耐摩損性、耐薬品性等の特性を具えていることは無論のこと、改善された接着性、ポリオレフィン等への密着性、アルキッド樹脂等への極性樹脂への相溶性に特徴を有しているものである。

このような環化重合体は、必要に応じて種々の配合剤を添加して印刷インキ、ポリオレフィン用塗料、防水防蝕用塗料、コーティング剤、コンクリート等の防水浸潤剤、耐薬品コーティング剤、

は31,000であつた。この低分子量イソブレン重合体をトルエンに溶解した後、無水マレイン酸を前記重合体100重量部に対して0.4～2.0重量部添加し、180℃の雰囲気中で攪拌することにより無水マレイン酸が低分子量イソブレン重合体のイソブレン単量体あたり0.27～1.32モル当り付加した変性低分子量イソブレン重合体を得た。

前記変性低分子量イソブレン重合体100重量部をトルエン100重量部に溶解し、触媒としてトリトルエンスルホン酸5重量部を添加し、100℃の温度下で攪拌して環化反応を行なつた。反応終了後、冷却し、アンモニア水(25%濃度)4重量部を添加して反応を停止し、次いで反応溶液を水洗した後、メタノール中に注ぎ込んで環化重合体を分別し、乾燥した。

得られた環化重合体は、黄褐色の固体であり、ウイス法にて評価したヨウ素価は、第1表のとおりであつた。なお、変性低分子量イソブレン重合体の代りに、未変性低分子量イソブレン重合体を用いて環化反応を行なつたところ、ヨウ素価が

電気絶縁材、ゴムと金属等の接着剤、フォトレジスト等の感光性樹脂材料、またはゴムの硬度、モジュラス等の改良のための配合剤として好ましく用いられる。さらには、天然ゴム(NR)や合成イソブレンゴム(IR)等から得られる環化重合体(環化ゴム)に対する、接着性、相溶性等の改良するための配合剤として用いられる。

以下、実施例によつて、本発明を具体的に説明するが、本発明はそれらの実施例になんら限定されるものではない。

実施例1

耐圧重合容器にn-ヘプタンを溶媒としてイソブレン単量体を仕込み、次いで触媒としてn-ブチルリチウムを添加し、不活性ガス存在下、60℃で5時間重合し、重合終了後重合溶液を水洗し、減圧下に乾燥して粘稠な液状の低分子量イソブレン重合体を得た。なお該重合体について赤外線吸収スペクトル法および粘度法によりシス-1,4結合量および粘度平均分子量を評価したところ、シス-1,4結合量は8.3%であり、粘度平均分子量は

209で、黄褐色の環化重合体を得られた。

このようにして得られた環化重合体20重量部を各々トルエン100重量部に溶解し、これに酸化チタン20重量部を加えて、いわゆるインキ配合物とした。この配合物を0.2mmのパーコートにより低密度ポリエチレンフィルム上に塗布し、1晩室温にて乾燥した。次いで得られた塗膜にセロテープを貼り、次いでセロテープをはがし、その時にセロテープによる塗膜の剥離が認められるか否かのセロテープ剥離試験に供し、環化重合体を含むインキ配合物のポリエチレンフィルムに対する接着性を評価した。その結果を第1表に示した。その結果については、まったく剥離が認められない場合を「優」で、10数回に1回の割合で極く一部に剥離が認められる場合を「可」で、また、毎同一部に剥離が認められる場合を「不可」で表わした。

また、同様に、インキ配合物が塗布された前記ポリエチレンフィルムを手で20数回もみ、塗膜面の状態の変化を観察し(以下、耐もみ性試験と称す。)、もみによる塗膜面のひび割れの生成状

第 1 表

	1	2	3	4	5	6	7	8
変性 FIP の MAN の付加 量(モル%)	0	0.27	0.33	1.1	3.3	5.9	11.9	12.5
環化重合体 のヨウ素価 (ウイス法)	209	211	211	212	215	217	220	220
セロテープ 剥離試験 結果	不可	可	良	優	優	優	優	優
耐もみ性 試験結果	不可	不可	良	優	優	優	優	優
相 溶 性 試験結果	不可	可	優	優	優	優	可	不可

況を評価した。その結果を第1表に示した。その結果については、ひび割れがまったく認められない場合には「優」、ひび割れがたまに認められる場合には「可」、およびひび割れが多数認められる場合には「不可」で表わした。

また、環化重合体 10 重量部およびアルキッド樹脂（日立化成工業製、商品名フタルキッド 555-50）10 重量部をトルエン 100 重量部に溶解し、該溶液をスライドガラスに塗延し、次いで乾燥した。得られた被膜の状態を観察し、環化重合体のアルキッド樹脂に対する相溶性を調べた（以下、相溶性試験と称す。）。その結果を第1表に示した。その結果について、均一で透明な被膜が形成されている場合には「優」で、充分ではないが一応透明性のある被膜が形成されている場合には「可」で、また不透明で相分離が認められる被膜が形成されている場合には「不可」で表わした。なお、無水マレイン酸が 11.9 モル%および 12.5 モル%付加された変性低分子量イソブレン重合体を用いた場合には、溶解作業性が著しく悪いものであった。

実施例 2

無水マレイン酸の添加量を 2 重量部とすること以外は、実施例 1 と同様にして、無水マレイン酸の付加量が 1.3 モル%の変性低分子量イソブレン重合体を得た。

この変性低分子量イソブレン重合体 100 重量部をトルエン 50 重量部に溶解し、触媒として濃硫酸（98%）5 重量部および四塩化チタン 5 重量部を添加し、100℃の温度で攪拌し、環化反応を行なった。反応終了後は、実施例 1 と同様にして環化重合体を分別し、乾燥した。

得られた環化重合体は、黄褐色の固体であり、そのヨウ素価は 201 であった。

この環化重合体を、実施例 1 と同様、セロテープ剥離試験、耐もみ性試験および相溶性試験に供し、その接着性および相溶性等の性能を調べた。その結果を第2表に示すが、前記環化重合体は、いずれの試験においても優れた性能を示すものであった。

実施例 3

実施例 1 において、ローブチルリチウムの使用量をかえることにより、シス-1,4 結合量が 85%で粘度平均分子量が 58,000 である低分子量イソブレン重合体を得た。実施例 1 と同様にして該重合体に無水マレイン酸を反応させ、無水マレイン酸の付加量が 2.4 モル%の無水マレイン酸変性低分子量イソブレン重合体を作つた後、70℃の温度下でメタノールを接触させることにより、マレイン酸モノメチルエステルの付加した変性低分子量イソブレン重合体を得た。

この変性重合体 100 重量部をトルエン 100 重量部に溶解し、触媒として p-トルエンスルホン酸 10 重量部を添加し、100℃に保持して攪拌下に反応を行なった後、アンモニア水 10 重量部の添加により、反応を停止し、反応液を水洗した後、メタノール中に注ぎ、環化重合体を分別し、次いで乾燥した。

このようにして得られた環化重合体は、黄色の固体であり、ヨウ素価 238 のものであった。

この環化重合体を、実施例 1 と同様、セロテ

第 2 表

使用した環化重合体の（製造）実施例	実施例 2	実施例 3	実施例 4
セロテープ剝離試験の結果	優	優	優
耐もみ性試験の結果	優	優	優
相溶性試験の結果	優	優	優

ープ剝離試験、耐もみ性試験、および相溶性試験に供し、その性能を調べた。その結果を第 2 表に示すが、この環化重合体は、接着性、相溶性に優れたものであつた。

実施例 4

実施例 1 で用いた無水マレイン酸を付加した変性低分子量イソブレン重合体に、ジメチルアミノプロピルアミンを加え、付加した無水マレイン酸基を半アミド化し、さらに該半アミド化物を 150℃ で加熱することにより、N-(ジメチルアミノプロピル)-マレインイミドが付加した変性低分子量イソブレン重合体を得た。

該変性重合体を用い、実施例 1 と同様の方法により環化反応を行ない、黄褐色でガラス面が 227 の環化重合体を得た。

この環化重合体を実施例 1 と同様に、セロテープ剝離試験、耐もみ性試験および相溶性試験に供し、その性能を調べた。その結果を第 2 表に示すが、この環化重合体は、接着性、相溶性に優れたものであつた。

第 1 表から明らかなように、実施例 2～4 で得られた環化重合体は、いずれも優れた密着性、樹脂との相溶性を示すが、比較例 1 の環化重合体は密着性も不十分であり、また相溶性も劣るものである。

特許出願人 株式会社 クラレ
代理人 弁理士 本 多 堅

手続補正書（自発）

昭和 56 年 11 月 2 日

特許庁長官 島田 幸樹 殿

1. 事件の表示

特願昭 56-30686 号

2. 発明の名称

環化重合体の製造方法

3. 補正をする者

事件との関係

特許出願人

倉敷市酒津 1621 番地

(108) 株式会社 クラレ

代表取締役 岡 林 次 男

4. 代理人

倉敷市酒津青江山 2045 の 1

株式会社 クラレ 内

電話 倉敷 0864(23) 2271 (代表)

(6747) 弁理士 本 多 堅

(東京連絡先)

株式会社クラレ特許部

電話 東京 03(56) 9182

5. 補正の対象

明細書の「発明の詳細な説明」の欄

6. 補正の内容

- (1) 明細書第 4 頁第 4～5 行に記載の「最終的に得られる環化重合体がフィルムとしての性能が劣つたものとなり」を「最終的に得られる環化重合体をフィルムとしたときそのフィルム物性が劣つたものとなり」と訂正する。
- (2) 同第 8 頁第 12～13 行に記載の「かかる誘導体化の反応」を「かかる誘導体を得るための反応」と訂正する。
- (3) 同第 15 頁第 1～2 行に記載の「この低分子量イソブレン重合体」を「この低分子量イソブレン重合体（第 1 表中、PIP と略記す）」と訂正する。
- (4) 同第 2 頁第 2 行に記載の「無水マレイン酸」を「無水マレイン酸（第 1 表中、MAN と略記す）」と訂正する。
- (5) 同第 16 頁に記載の第 1 表を次のとおりに訂正する。

第 1 表

実 験 地	比 較 例		実 施 例					比較例
	1	2	3	4	5	6	7	8
変性PIPの MANの付加 量(モル%)	0	0.27	0.33	1.1	3.3	5.9	11.9	12.5
環化重合体 のヨウ素価 (ウイス法)	209	211	211	212	215	217	220	220
セロテープ 剝離試験 結 果	不可	可	可	優	優	優	優	優
耐もみ性 試験結果	不可	不可	可	優	優	優	優	優
相 溶 性 試験結果	不可	可	優	優	優	優	可	不可

変性PIP : シスー1,4結合85%、粘度平均分子
量31,000の低分子量イソプレン重合体
に無水マレイン酸を付加した変性低
重合体を意味する。

MAN : 無水マレイン酸を意味する。

- (6) 第19頁第6行に記載の「実施例1で用いた」
を「実施例1の実験例4で用いた」と訂正する
- (7) 第20頁第2表の下に記載の「第1表から明ら
かなように、実施例2～4で得られた環化重合
体は、いずれも優れた密着性、樹脂との相溶性
を示すが、比較例1の環化重合体は密着性も不
充分であり、また相溶性も劣るものである。」
を「第2表から明らかなように、実施例2～4
で得られた環化重合体は、いずれも優れた密着
性、樹脂との相溶性を示す。」と訂正する。

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.